



TITLE:

超伝導混合状態でのドハース・ファンアルフェン効果(強相関伝導系の物理 若手秋の学校,講義ノート)

AUTHOR(S):

稲田, 佳彦

CITATION:

稲田, 佳彦. 超伝導混合状態でのドハース・ファンアルフェン効果(強相関伝導系の物理 若手秋の学校,講義ノート). 物性研究 1998, 70(2): 201-217

ISSUE DATE:

1998-05-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96352>

RIGHT:

超伝導混合状態でのドハース・ファンアルフエン効果

大阪大学大学院理学研究科

稲田佳彦*

1 はじめに

ドハースファンアルフエン (de Haas · van Alphen, 略して dHvA) 効果は、現在、フェルミ面を研究する有力な実験手段のひとつとして利用されている。dHvA 効果を用いるとフェルミ面の諸性質を決定することが可能であり、 f 電子と伝導電子の相関が本質的な重い電子系の研究に重要な役割を担っている。dHvA 効果はフェルミエネルギーでの分布関数の不連続に起因した現象であり、フェルミエネルギー E_F にギャップがありフェルミ面を持たない絶縁体では観測されない。ところが、最近、フェルミ面上にギャップが形成されているはずの超伝導混合状態でも dHvA 振動が観測され興味を集めている。

dHvA 効果は磁場中で観測される磁化の振動現象であり、超伝導混合状態での dHvA 振動は磁場中での超伝導状態と深く関わっている。磁場中の超伝導状態は、古くから Ginzburg-Landau (GL) 理論で扱ってはいるものの、磁場の効果は、クーパー対の重心運動の増加による転移温度の減少や磁場エネルギーとしてしか取り入れられていない。これは、磁場中で特徴的な量子状態であるランダウ準位を無視できるという仮定を用いており、 $k_B T_c \gg \hbar \omega_c$ (サイクロトロン角振動数 $\omega_c = eB/m^*c$) の時に成立する。dHvA 効果はランダウ準位が明確に定義される領域で観測される現象であり、ランダウ準位も取り入れた磁場中の超伝導理論は、幾つかの試みはあるがまだ確定されてはいない [1, 2]。

また、超伝導混合状態の dHvA 効果が異方的超伝導研究のためのプローブとして使える可能性がある。強相関伝導系ではその強い相関のためオンサイトでの斥力が強く、超伝導電子対の対関数が s 波以外の異方的な場合があり、それを反映して超伝導ギャップがフェルミ面上でノード (節) をもつことが期待される (図 1 [3])。dHvA 効果を生ずるフェルミ面上の軌道がそのノードの領域をどう通過するかで dHvA 信号に影響がでると思われ、それを用いてギャップの異方性を現実のフェルミ面上にマップできることが期待される。電子相関の強さあるいは有効質量や磁性への寄与の強さなどは現実のフェルミ面上では一様ではなく、そのフェルミ面上にどのように超伝導ギャップが生じ、超伝導電子対関数にどう影響を与えるのか素朴な興味である。超伝導混合状態での dHvA 効果の研究を進めることは、現実のフェルミ面に立脚した異方的超伝導形成機構の研究に有力な情報を与えることが期待され、強相関伝導系の超伝導の研究には重要だと思われる。

しかし、現在、超伝導混合状態での dHvA 効果の機構は真に説明されているという状態ではなく、まだまだ問題点が多い段階である。ここでは、超伝導混合状態での dHvA 効果に話題を絞り、最近の実験結果とその解釈について紹介する。まず、dHvA 効果の原理と特徴を簡単に説明し、超伝導混合状態の dHvA 効果の実験結果および考えられる機構の紹介をし、現時点での問題点、興味深い点などについてまとめる。

*e-mail : inada@phys.sci.osaka-u.ac.jp

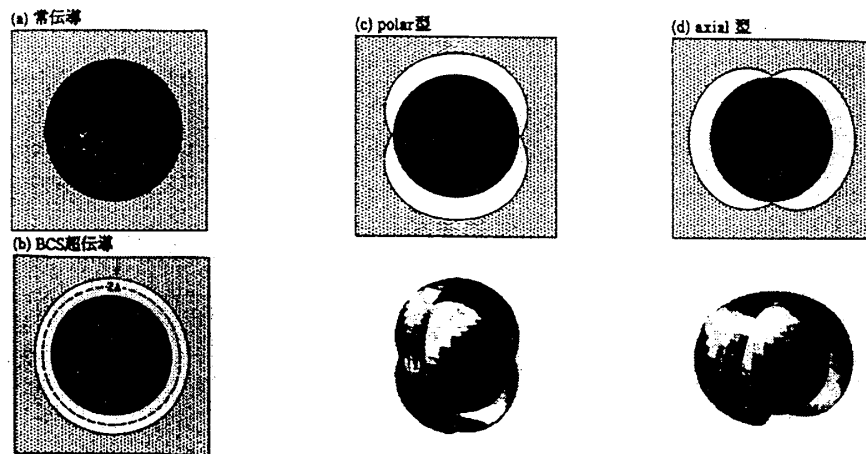


図 1: 異方的ギャップの例の模式図。(a) が常伝導状態、(b) が等方的な BCS ギャップ状態、(c)polar 型、(d)axial 型

2 dHvA 効果の原理

ここでは dHvA 効果の原理と特徴を簡単に説明する。詳細は文献 [4-9] を参照されたい。

dHvA 効果は「導体の磁化の強さが、磁場強度の逆数を変数として一定周期をもつような振動的变化を示す現象」[7] で、dHvA 振動の模式的な一例を図 2(b) に示す。この振動は図 2(a) の様なフェルミ面が存在し図の a 方向に磁場がかかっているときに観測される。横軸を磁場の逆数 (Oe^{-1}) にとると振動の周期は等間隔で、その周波数 F_a は図の領域 S_a (磁場に垂直方向の極値断面積) の面積と

$$F_a = \frac{c\hbar}{2\pi e} S_a \quad (1)$$

の比例関係で結ばれている。ここで極値断面積とは、フェルミ面を磁場に垂直な無数の平面でスライスしたときにその面積が極大あるいは極小値をとるようなスライスのことである (図 2(c))。図 2(a) の場合、極値断面積は磁場を b 方向に傾けていくと増大し、b 方向に磁場を加えた場合は面積 S_b に比例した周波数の振動が検出される。ゆえに、dHvA 周波数 F の磁場方向依存性を調べるとフェルミ面の大きさと形が決定される。一般にはフェルミ面は複雑で、バンド計算も参考にしてフェルミ面を決定することが多い。

dHvA 振動は、磁場を印加したときにランダウ準位に縮退した伝導電子が、磁場を増加させると次々にフェルミ面を通過し、伝導電子系の自由エネルギーが振動することから生ずる。ゆえに内部磁場 B がないと dHvA 効果は発生しない。超伝導状態で dHvA 効果が観測されるのは、下部臨界磁場 H_{c1} 以上の、完全反磁性が壊れて磁束が侵入している混合状態の時のみである。また、磁場方向の電子状態はフェルミ縮退しているのでフェルミエネルギー E_F 以上では電子が存在できず、ランダウ準位がフェルミ面を通過するときに急激に電子が別の軌道に再配列をすることがポイントなので、フェルミ面がシャープに定義できないときには振動がぼやけてしまう。

自由エネルギーの振動成分 $\tilde{\Omega}$ は以下のように与えられる [10]。本編では、内部磁場 B と実験で

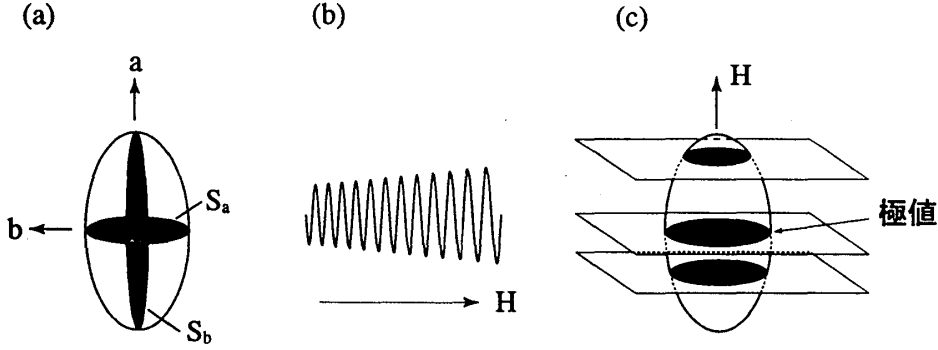


図 2: 模式的な dHvA 効果。(a) のようなフェルミ面を仮定して、磁場を a 方向に加えたときの振動が (b)。

印加する外部磁場 H を等しいとして、 H で記述する。

$$\tilde{\Omega} = - \left(\frac{e}{2\pi c \hbar} \right)^{\frac{2}{3}} \frac{\beta H^{5/2} V}{\pi^2 |S''|^{1/2}} \sum_{p=1}^{\infty} p^{-5/2} R_T \cdot R_D \cdot R_s \cdot \cos \left[2\pi p \left(\frac{F}{H} - \gamma \right) \pm \frac{\pi}{4} \right] \quad (2)$$

$$R_T = \frac{2\pi p k_B T / \beta H}{\sinh(2\pi^2 p k_B T / \beta H)} \quad (3)$$

$$R_D = \exp \left(-2\pi^2 p k_B T_D / \beta H \right) \quad (4)$$

$$R_s = \cos \left(\frac{\pi}{2} p g (m^*/m_0) \right) \quad (5)$$

$$\beta = e \hbar / m_c^* c \quad (6)$$

$$S'' = \frac{\partial^2 S}{\partial k_z^2} \quad (7)$$

ここで、 R_T は有限温度のために E_F 近傍の分布がぼやけて dHvA 振動の振幅が小さくなる効果を表しており、 R_D は dHvA 効果を生じる準粒子の寿命が有限であることから Landau 準位が幅をもち振幅が小さくなる効果を表しており、 R_s は上向きスピンと下向きスピンがゼーマンで分裂してそれぞれのランダウ準位を形成することで振動を打ち消す効果を表している。また、 T_D はディンゲル温度とよばれ、準粒子の寿命 τ の軌道上の平均値 τ と

$$T_D = \frac{\hbar}{2\pi k_B} \frac{1}{\tau} \quad (8)$$

で結ばれている。 R_T にサイクロトロン有効質量 m_c^* が含まれているので、振動振幅の温度依存性を測定すると m^* が決定される。また、 R_D に T_D が含まれているので、振動振幅の磁場依存性を測定すると τ が決定される。 R_s を利用すれば、伝導電子の g 因子を求めることも可能である。

実際は、この自由エネルギーの振動を色々な物理量で実験的に検出する。自由エネルギーを磁場で 1 階微分すれば磁化の振動が得られ、

$$\begin{aligned} \tilde{M} = & - \left(\frac{e}{2\pi c \hbar} \right)^{\frac{2}{3}} \frac{2F k_B T V}{|2\pi H S''|^{1/2}} \\ & \times \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\exp(-2\pi^2 p k_B T_D / \beta H) \cos \left(\frac{\pi}{2} p g \frac{m^*}{m_0} \right)}{p^{1/2} \sinh(2\pi^2 p k_B T / \beta H)} \sin \left[2\pi p \left(\frac{F}{H} - \gamma \right) \pm \frac{\pi}{4} \right] \end{aligned} \quad (9)$$

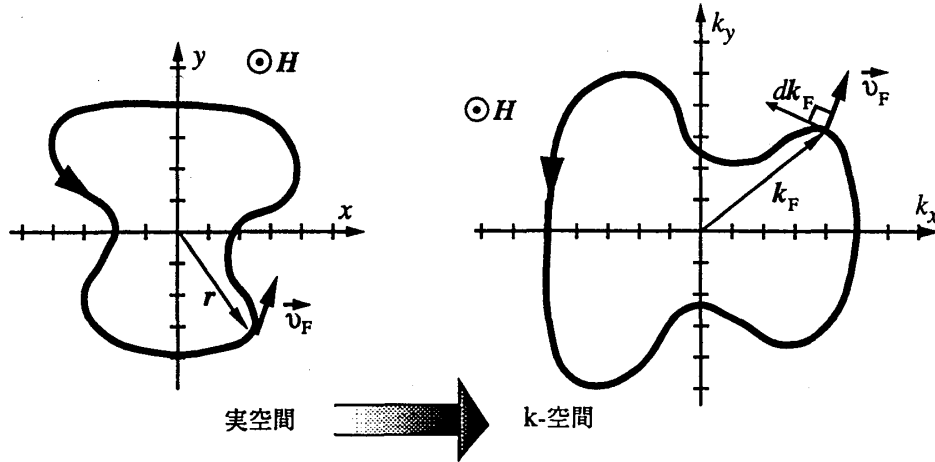


図 3: 実空間と k -空間の軌道の関係。磁場方向を回転軸に 90 度回転させた相似形になる。
 \vec{v} は実空間では軌道の接線方向、 k -空間では軌道（フェルミ面）に垂直な方向になる。

となり、これが一般的な dHvA 効果となる。温度で微分すればエントロピーに振動が現れ、磁気熱量効果として dHvA 振動が観測される。

ところで、以下で、実空間のサイクロトロン運動と k 空間の軌道の結び付きをイメージしてみる。電荷 $-e$ 、速度 \vec{v}_F をもつ荷電粒子は、磁場中でローレンツ力

$$\vec{F} = -\frac{e}{c} \vec{v}_F \times \vec{H} \quad (10)$$

を受けサイクロトロン運動をする (\vec{B} を用いるのが正確だが、ここでは \vec{H} で記述する)。プロット波で記述される金属中の伝導電子の場合は、その波数ベクトルを \vec{k} として、運動方程式 $\vec{F} = -\hbar d\vec{k}_F/dt$ を式 (10) に代入して時間で積分すると

$$\frac{e}{c\hbar} \vec{r} \times \vec{H} = -(\vec{k}_F - \vec{k}_0) \quad (11)$$

が得られる。これから、磁場方向に垂直な実空間の軌道は k -空間の軌道と相似形 (k -空間 : 実空間 = $eH/c\hbar : 1$) で、磁場方向を回転軸として 90 度回転させたものになることがわかる (図 3)。これは、実空間の磁束格子とフェルミ面上の軌道の関係あるいはフェルミ面にオープン軌道があるときの磁気抵抗の解釈などを考えるときに有用である。

次に、超伝導状態での dHvA 効果の実験結果をみてみよう。

3 超伝導混合状態での dHvA 効果

最初の超伝導混合状態での dHvA 効果は、1976 年に NbSe₂ の磁気熱量効果の振動として観測された [11]。その後、交流磁化を用いたスタンダードな測定法でも明確な dHvA 振動が確認されている [12, 13]。そして、現在までに、V₃Si [14, 15]、Nb₃Sn [16]、YNi₂B₂C [17, 18]、CeRu₂ [19, 24]、URu₂Si₂ [20, 21]、YBa₂Cu₃O₇ [22, 23] など H_{c2} 以下の dHvA 振動が報告されている。YBa₂Cu₃O₇ については H_{c2} が高く常伝導状態での dHvA 効果は測定されていないので、その他の物質で常伝導と超伝導状態で dHvA 効果がどう変化するのか実験結果を簡単に観てみよう。こ

ここでは、dHvA 効果から得られる物理量のうち、dHvA 周波数 F 、サイクロトロン有効質量 m^* 、サイクロトロン運動する準粒子の寿命 τ 又はディンゲル温度 T_D に着目する。 F はフェルミ面の磁場に垂直な極値断面積の大きさを示し、超伝導と常伝導で“フェルミ面”の大きさが変化するかどうか分かる。極値軌道上の準粒子の m^* と τ が、実空間でサイクロトロン軌道を描くとき、超伝導混合状態で磁束格子によりどんな影響を受けるかを知ることができる。

3.1 NbSe₂

図 4(a) が、典型的な NbSe₂ の dHvA 振動の様子およびその振動成分のフーリエスペクトルである [13]。測定温度は 20 mK で磁場を六方晶の c 軸から 70° 傾けた方向にかけている。横軸は $1/B$ にとっており、振動が等間隔に続いているのが分かる。0.12 から 0.14 T⁻¹ では超伝導混合状態における磁束格子のピン止めが絡んだ、いわゆるピーク効果のため振動が観測できないが、 H_{c2} はおよそ 9.3 T (0.11 T⁻¹) であり、明らかに常伝導状態と超伝導混合状態の両方で信号が観測されている。図 4(b) は、常伝導 (normal) 状態でも、超伝導混合 (vortex) 状態でも dHvA 振動数 $F = 152 \pm 1$ T の明確な振動が存在することを示しており、これは極値断面積 0.014 \AA^{-2} をもつフェルミ面が存在することを示している。実験の分解能内では変化は観測されていない。 m^* は常伝導状態 ($B = 11.1$ T) で $0.62 \pm 0.01 m_0$ (m_0 は電子の静止質量)、超伝導状態 ($B = 5.3$ T) で $0.60 \pm 0.01 m_0$ であり、明確な変化は観測されていない。

一方、 τ は常伝導状態から超伝導状態になると短くなる。超伝導状態では、常伝導状態の τ_0 にプラスして寿命を短くする効果が働き、散乱緩和率で考えると常伝導の τ_0^{-1} に τ_s^{-1} という超伝導による付加的な散乱緩和率が加算される。 τ_s^{-1} の磁場依存性を図 5 に示す。

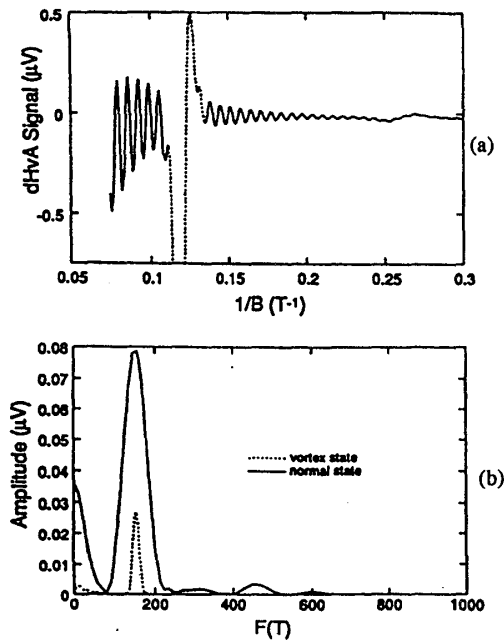


図 4: NbSe₂ の dHvA 振動

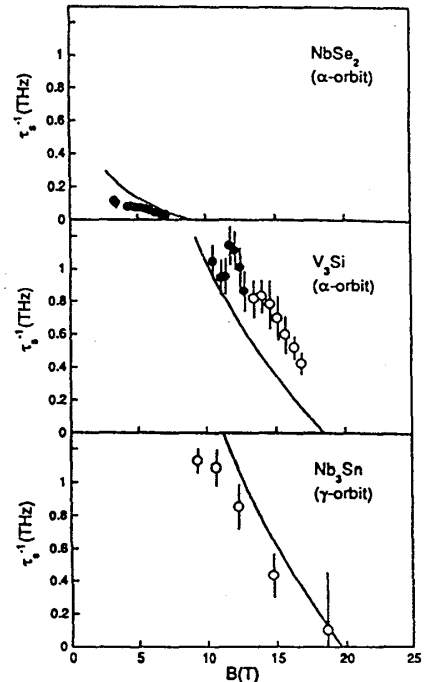


図 5: NbSe₂、V₃Si、Nb₃Sn の τ_s^{-1} の磁場依存性。

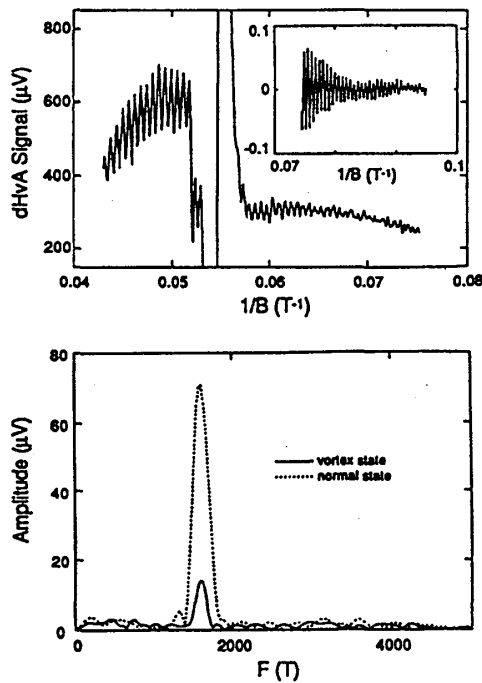


図 6: V_3Si の dHvA 振動

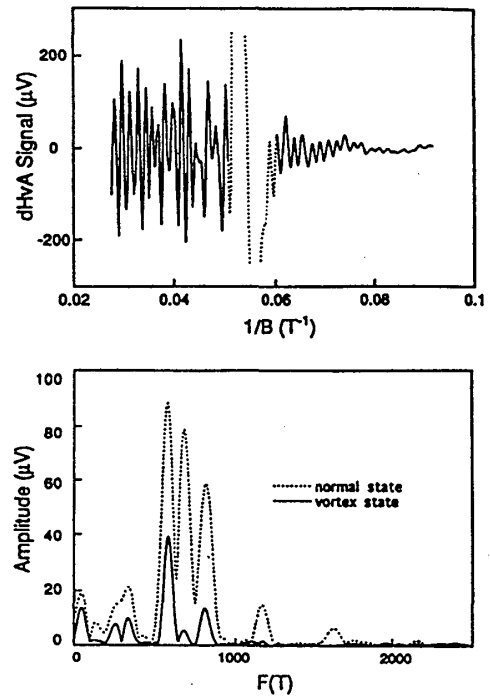


図 7: Nb_3Sn の dHvA 振動

3.2 V_3Si

図 6 にパルス磁場を用いて観測された V_3Si の dHvA 振動を示す。測定温度は 1.3 K であり、やはり 18 T 付近はピーク効果のために振動が観測できないが、 $H_{c2} \simeq 19$ T の上下で振動が観測されている。挿入図は低磁場の定常磁場中で変調磁場法を用いて得られた信号である。この物質でも信号の振動成分をみると $F = 1570$ T で変化はなく、また m^* も常伝導状態 ($B = 21$ T) で $1.6 \pm 0.1 m_0$ (m_0 は電子の静止質量)、超伝導状態 ($B = 16$ T) で $1.7 \pm 0.3 m_0$ と明確な変化は観測されなかった。

τ_s^{-1} は $NbSe_2$ と同様、超伝導状態で増加する。その様子を図 5 に示す。

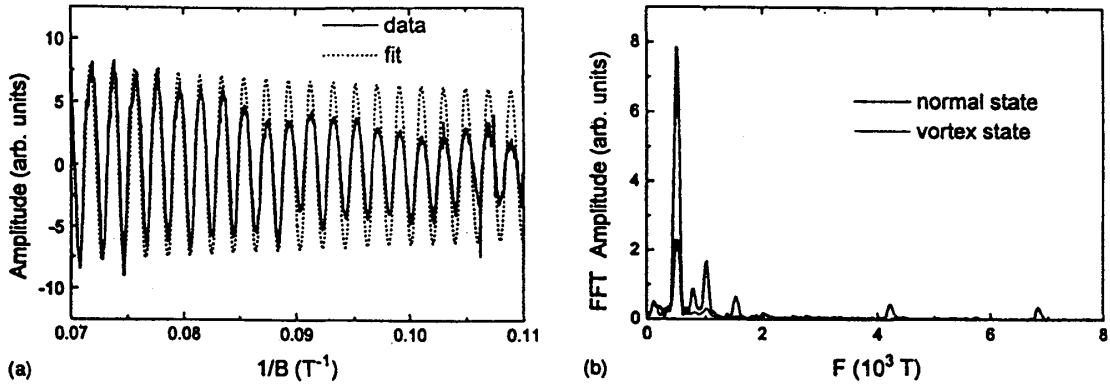
3.3 Nb_3Sn

図 3.3 にパルス磁場を用いて観測された Nb_3Sn の dHvA 振動を示す。測定温度は 1.3 K であり、これも 18 T 付近はピーク効果のために振動が観測できないが、 $H_{c2} \simeq 20$ T の上下で振動が観測されている。この振動には最低 7 つの振動成分が検出され、全ての振動周波数は超伝導と常伝導で変化しない。

主要な信号の γ 軌道 ($F = 581$ T) の τ_s^{-1} もやはり超伝導状態で増加する。その様子を図 3.1 に示す。 γ 軌道の有効質量は $1.10 \pm 0.06 m_0$ である。

3.4 YNi_2B_2C

図 8 にトルク法で測定された YNi_2B_2C の dHvA 振動を示す。測定温度は 0.4 K である。 H_{c2} は 10.5 T ($0.095 T^{-1}$) だが、この物質ではピン止めによる磁化の異常は観測されず、また、 H_{c2} で

図 8: $\text{YNi}_2\text{B}_3\text{C}$ の dHvA 振動と FFT スペクトル

急激な変化を示すことなく常伝導状態から超伝導状態まで連続して信号が観測されている。破線は $F = 510.7 \text{ T}$ 、 $m^* = 0.34$ 、 $T_D = 0.264 \text{ K}$ 、 $T = 0.4 \text{ K}$ の常伝導状態のパラメータを入れて式 (9) を計算した結果（常伝導状態の信号がそのまま続いたとしたときの信号）で、振動の位相には超伝導の影響が全くないことが分かる。振幅は H_{c2} 近傍から少しずつ減少している。これは他の物質と同様、 τ_s^{-1} の増加が原因である。

3.5 CeRu_2

次に、 CeRu_2 の結果を少し詳しく見てみよう [19, 24]。図 9 に CeRu_2 で得られた dHvA 振動の様子を示す。 CeRu_2 でも $H_{c2} \simeq 55 \text{ kOe}$ のすぐ下にピーク効果のため観測できない領域があるが、常伝導と超伝導の両方で明確な振動が確認できる。 CeRu_2 では質の異なる 5 種類の試料で dHvA 効果の観測に成功し試料依存性を調べることができた。図の信号は、そのうち、残留抵抗比 (RRR) が 60 (#4)、200 (#7C)、270 (#7A) の様子を示したものである。RRR は大きいほうが残留抵抗が小さく純良な単結晶である。図 10 に示すように、この方向の周波数成分には $\epsilon_{1,2,3}$ と δ_1 のブランチが存在し、やはり超伝導と常伝導で周波数 F は変化しない。 $H \parallel \langle 100 \rangle$ では $F = 2.27 \times 10^7 \text{ Oe}$ の α ブランチが測定されており、これも変化は観測されていない。

dHvA 効果がどんな軌道から来ているのかをイメージするために、図 11 に示す CeRu_2 の実際のフェルミ面を見てみよう。図 11(a') は図 11(a) の一部の断面を切り取った様子である。 CeRu_2 は電子と正孔が同数の金属であり、このフェルミ面はバンド 20 が形成する主要な正孔フェルミ面である。 α ブランチはこの正孔フェルミ面の内部の空洞を回る軌道からきており、 δ ブランチは $\langle 111 \rangle$ 方向に延びるアームからきている。(b) は ϵ 軌道の通るバンド 22 が形成する電子フェルミ面の様子である。常伝導から超伝導になっても、これらの軌道から dHvA 振動が起こっていることになる。実験的には“フェルミ面”の大きさは変化していない。

CeRu_2 ではこれまで説明した物質とは違い、サイクロトロン有効質量 m_c^* に明確な磁場変化が観測された (図 12)。(a) をみると、常伝導領域で一定だった m_c^* は、超伝導領域では観測される全てのブランチで徐々に減少することがわかる。(b) はそれぞれのブランチの常伝導状態での有効質量で規格化したものだが、超伝導領域の \tilde{m}_c^*/m_c^* の磁場依存性はすべてのブランチで一致する。 $\tilde{m}_c^* = f(H)m_c^*$ ($f(H)$ は磁場依存する関数) とすると、 $f(H)$ にはフェルミ面上の軌道の違いが

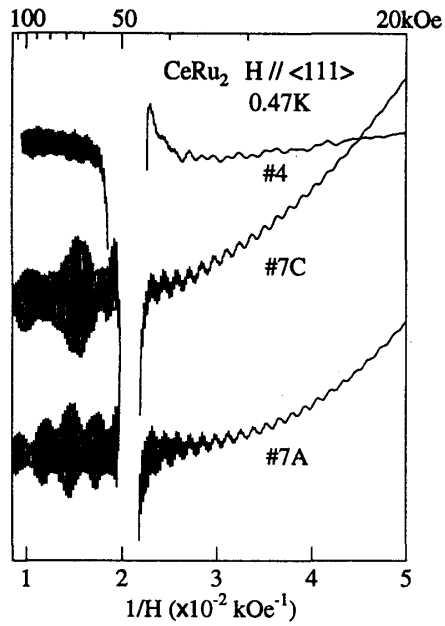


図 9: CeRu_2 の dHvA 振動。残留抵抗比 (RRR) が 60 (#4)、200 (#7C)、270 (#7A) の試料の測定結果。

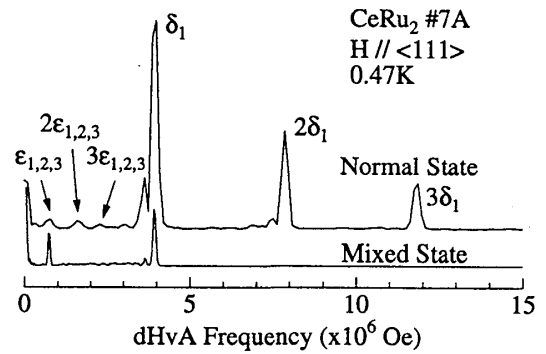


図 10: CeRu_2 の FFT スペクトル。

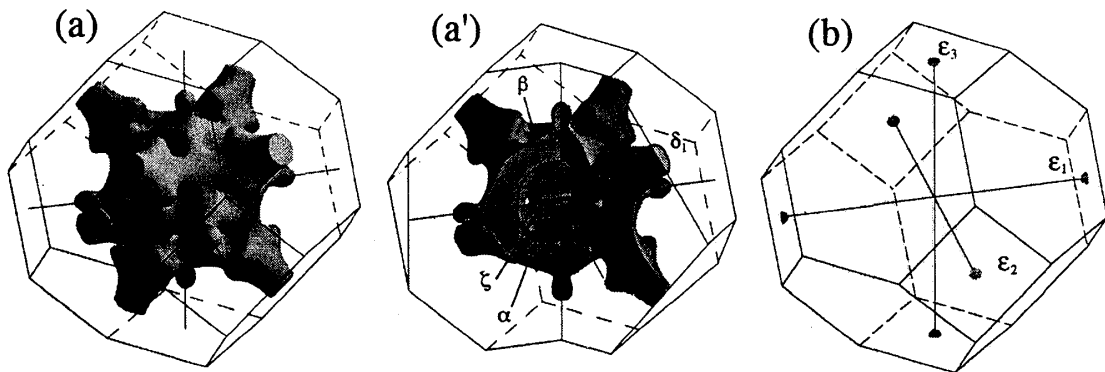


図 11: CeRu_2 のフェルミ面。(a) がメインのホール面で、軌道がわかりやすいように切断したのが (a')。(b) が ϵ が発生する電子面

反映されないことを示している。

T_D あるいは τ_s^{-1} は、 \tilde{m}_c^* が磁場依存性をもつので、注意して解析する。図13がその結果である。縦軸はディンクル温度 T_D を表しており、前節で述べたように $\tau^{-1} = 2\pi k_B T_D / \hbar$ の関係で τ^{-1} と結びついている。CeRu₂でも超伝導状態で τ_s^{-1} (ΔT_D) は増加する。更に、純良性の異なる5つの試料で測定した結果、常伝導領域での τ_n^{-1} (不純物散乱や格子欠陥から来る) が異なっているが、超伝導状態の τ_s^{-1} には変化がなく、超伝導状態の散乱緩和率あるいはディンクル温度は $\tau_s^{-1} + \tau_n^{-1}$ 、及び $T_D(\text{ノーマル}) + \Delta T_D$ で構成されることが確認された。

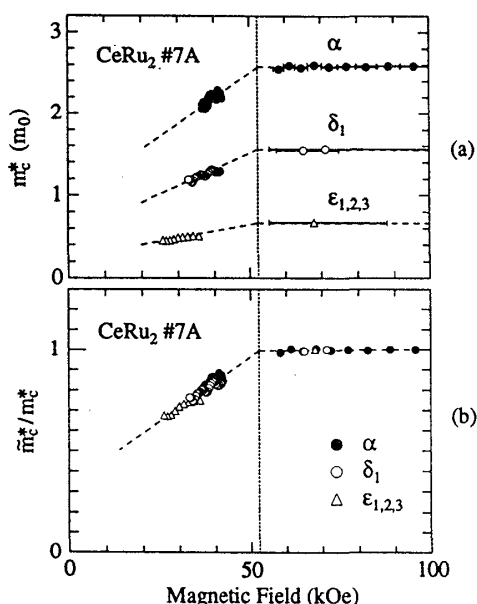


図 12: CeRu₂のサイクロトロン有効質量の変化。(b) は常伝導状態の値で規格化したもの。

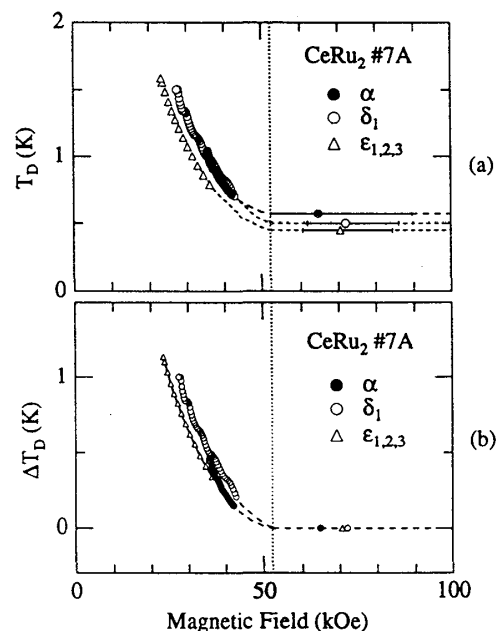


図 13: CeRu₂のディンクル温度の変化。(b) は常伝導状態と超伝導状態のディンクル温度の差をプロットしている。

3.6 URu₂Si₂

URu₂Si₂は比熱やNMRの結果から、超伝導ギャップが赤道でノードをもつと考えられている。dHvA効果でそれを検出するまでには至っていないが、一つのブランチで超伝導と常伝導領域でdHvA効果が観測されている。図14(a)がその振動の様子である[21]。H_{c2}を挟んで信号が連続的につながっており、超伝導の影響がないように見える。しかし、 m_c^* は図15に示すようにH_{c2}をはさんで明確に減少を示しており、 T_D (τ_s^{-1}) も増加している。 T_D の増加による信号振幅の減少は m_c^* が軽くなることである程度キャンセルされ、振動振幅がH_{c2}を挟んでも変化ないように一見思える。URu₂Si₂も他の物質と同様に $F = 1.2 \times 10^7$ Oe は変化を示さなかった。

4 超伝導混合状態での dHvA 効果の機構

以上の実験結果をまとめると次の通りで、

- (1) dHvA 周波数 F は変化しない

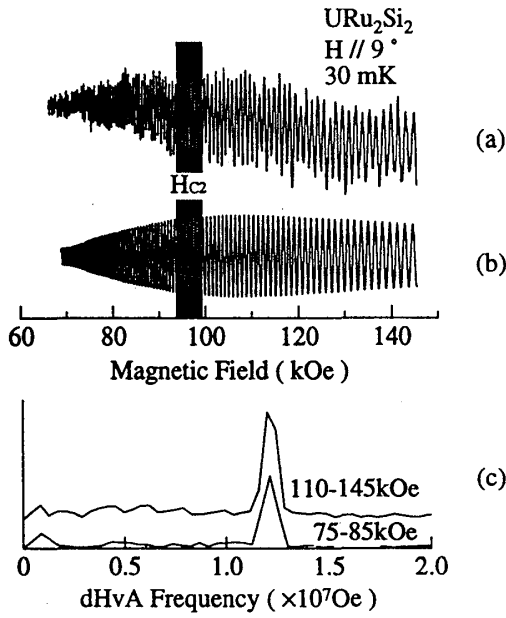


図 14: URu₂Si₂ の dHvA 振動

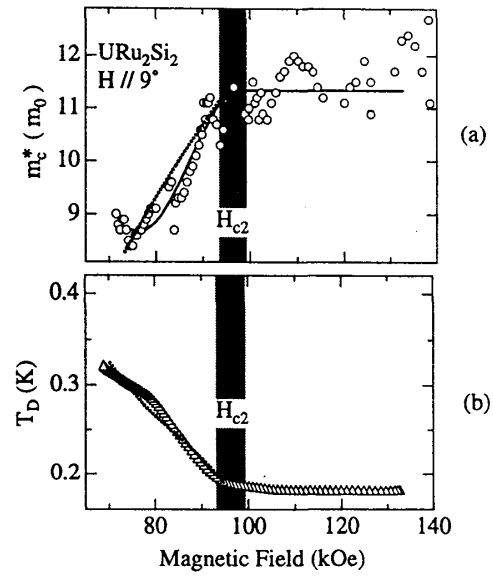


図 15: URu₂Si₂ の有効質量とデイングル温度 T_D の磁場依存性。 H_{c2} で明確な変化が確認できる。

(2) 散乱緩和率 τ^{-1} (デイングル温度 T_D) は増大する

(3) サイクロトロン有効質量 m^* は CeRu₂ と URu₂Si₂ では減少するがそのほかの物質では明確な変化は見出されない。

この結果を素直に解釈すると、超伝導状態と常伝導状態ではフェルミ面は変化しない、超伝導状態では常伝導状態の散乱機構とは別の散乱機構が存在しそれは磁場の減少とともに増大するということになる。

なぜこのような傾向を示すのか、ここでは、磁場によって超伝導電子対が壊れて生成された準粒子が超伝導混合状態の dHvA 効果を生ずるという立場に立って議論してみよう。この立場では、超伝導状態の中を貫く磁束格子が存在することによりオーダーパラメータに空間分布が形成され、その結果たとえ絶対零度であっても準粒子が有限の寿命をもって生成されると考える。

第二種超伝導体は磁束格子を組むことで表面エネルギーの利得を稼ぎ、理想的には図 16 のような磁束の三角格子を組む。図は CeRu₂ の $H = 0.7H_{c2}$ のときの様子をあらわしており、図中に観測にかかったブランチが実空間で描く軌道をフェルミ面を球と仮定して半古典的に描いている(磁場方向の運動は無視している)。磁束は直径が約 2ξ (ξ は超伝導のコヒーレンス長) で、紙面に垂直に貫いていると単純化した。磁束の中は磁場が侵入し、超伝導のオーダーパラメータ $\Psi(r)$ も減少し、空間分布を形成する。CeRu₂ の GL パラメータ $\kappa = 25$ を使ってその様子を計算した結果が図 17 である。大きな κ (長い磁場侵入長 λ) を反映して磁場の空間変化 δh は極めて小さく、dHvA 効果が測定されている磁場領域では磁場の不均一はほぼ無視できることがわかる。磁場の不均一は dHvA 効果には不利にはたらくが、 κ が大きいことでそれがクリアされている。表 1 に示すように、他の超伝導体でも κ は大きい。また、dHvA 効果の観測条件を充たすためには高い H_{c2} は有利にはたらく。

表 1: 超伝導に関するパラメータ

	T_c (K)	H_{c2} (T)	$\Delta(0)$ (meV)	κ
NbSe ₂	7.2	14.5($H \parallel c$), 4.5($H \perp c$)	1.1	31
V ₃ Si	17.0	18.5	2.6	17
Nb ₃ Sn	18.3	19.7	3.2	
CeRu ₂	6.4	5.2	1.0	25
YNi ₂ B ₂ C	15.6	8.1	2.3	27
URu ₂ Si ₂	1.4	14($H \parallel a$), 3($H \parallel c$)		30 以上

超伝導はその位相が物質内で一様な秩序状態をとり、位相を乱すことを嫌う。オーダーパラメータの空間変化は超伝導の位相が乱れることに相当し、それを一種の散乱と考えてそれによる準粒子の生成を考える。

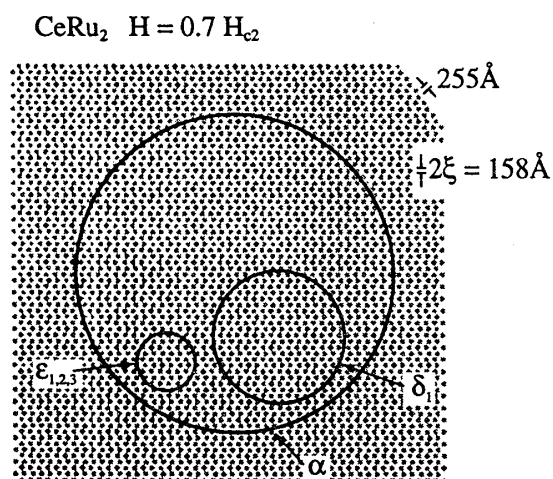


図 16: 実空間での磁束の様子。CeRu₂の $H = 0.7H_{c2}$ の場合。

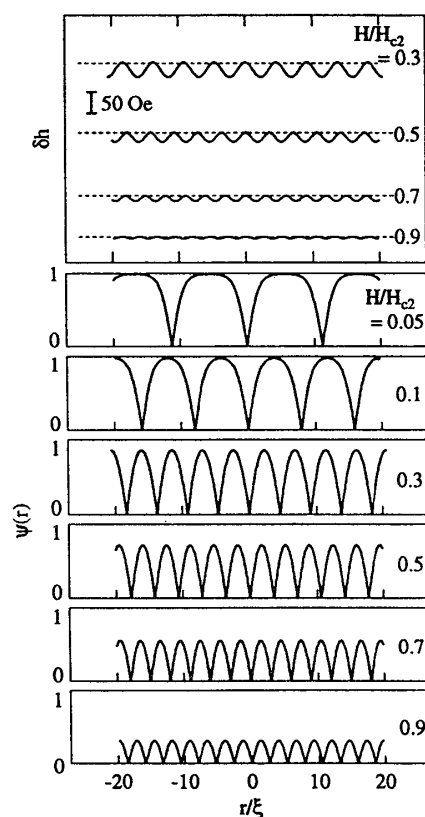


図 17: CeRu₂における超伝導オーダーパラメータの空間分布の様子と磁場分布

ここで、準粒子の運動量ベクトル \vec{p} の方向によって準粒子の生成の割合に大きな異方性が発生する。すなわち、図 16で、紙面内に \vec{p} が向いている場合 ($H \perp \vec{p}$)、オーダーパラメータの位相変化を最大限受けることになるが、紙面に垂直な場合 ($H \parallel \vec{p}$) は磁束を通過することがないので影響がなく準粒子の生成が抑えられる。つまり、 $H \perp \vec{p}$ の \vec{p} が最も準粒子を生成しやすい。実は、

$H \perp \vec{p}$ は dHvA 効果にとっては重要な配位である。 k 空間において、フェルミ面上の任意の点の速度ベクトル \vec{v}_F はフェルミ面に垂直に定義されるので、 $H \perp \vec{p}$ を充たす \vec{p} はちょうど dHvA 効果を生み出す極値断面積の軌道上に存在する。この方向では準粒子が多く生成される。その様子を球状フェルミ面を仮定して計算し模式的に示したものが図 18 である。 $H = 0$ と $H = 0.7H_{c2}$ の様子を示しており、超伝導ギャップの大きさは誇張して描いてある。 $H = 0$ では全方向でよく知られた BCS 的超伝導ギャップ 2Δ が開いている。磁場中では極付近で 2Δ のギャップが開いているが、赤道付近は多くの準粒子が生成されギャップが小さくなっているのがわかる。これにより、超伝導状態でも赤道付近の準粒子の軌道を反映した dHvA 効果が観測されることになる。

このような考え方は文献 [25] の Brandt 達によるものであり、この Brandt 達の状態密度をもう少し詳しくみてみよう。図 19 は横軸が磁場 H を H_{c2} で規格化したもの、縦軸がフェルミエネルギー ($\omega = 0$) における準粒子状態密度 N_s を常伝導での状態密度 N_0 で規格化したものである。 θ は磁場方向から測った角度で $\theta = \pi/2$ が dHvA 効果に関係する極値の領域を表す。 $\theta = \pi/2$ では $H = 0.5H_{c2}$ でもまだ 8 割以上の準粒子が残っており、dHvA 効果を起こすには十分である。この準粒子の角度依存性を積分して全準粒子密度をもとめると図 20 のようになる。 $H/H_{c2} = 0$ で BCS 的な鋭いピークをもった状態密度は、磁場が増すにつれピークがなまり、フェルミエネルギー ($\omega = 0$) 近傍にフラットな有限の状態密度を生成する。その殆どは図 18 に示した赤道付近の準粒子によるものである。ところで、電子比熱は全てのフェルミ面上の状態密度の和を反映するので、電子比熱 C_e を測定することで図 20 の状態密度が形成されているかどうかを間接的に確かめることができる。

CeRu₂ で見てみよう。CeRu₂ はゼロ磁場での比熱や NMR の T_1^{-1} の温度依存性が指数関数的なことや T_1^{-1} にコヒーレンスピークが観測されることなどから等方的な s 波超伝導体と考えられており、Brandt の状態密度を確認するのに適した物質である。図 21 に C_e/T 対 H の測定結果を示す。実線は Brandt の状態密度を仮定して比熱を計算した曲線である。実験と良く一致しており、磁場中の状態密度は Brandt の予想したものに近いことの証拠と思われる。

散乱緩和率 τ_s^{-1} の増大については以下のように解釈できる。超伝導混合状態中の dHvA 効果が Brandt の状態密度の赤道付近の準粒子からおこるとすると、その準粒子の寿命が τ_s^{-1} に反映される。これは、不純物による散乱が原因の寿命などとは異なり、準粒子自身の寿命によるものである。これは、Brandt の状態密度を導くときに用いた自己エネルギーの虚部を計算することで求めることができる [26]。それによると、超伝導状態での散乱緩和率 τ_s^{-1} は、

$$\begin{aligned} \tau_s^{-1} &= \frac{\Delta(H)^2 2\pi^{1/2} \Lambda}{\hbar v_F} \\ \Lambda &= \sqrt{2\hbar e H} \end{aligned} \quad (12)$$

で与えられる。ここで、 v_F は dHvA 効果をおこす軌道上でのフェルミ速度、 Δ は空間平均されたオーダーパラメータで $\Delta(H)^2 = \Delta(0)^2(1 - H/H_{c2})$ で近似される。 $\Delta(0)$ は磁場 0 での BCS 的ギャップである。式 (13) によると、 H_{c2} から磁場を下げていくと τ_s^{-1} は増加する。図 22 の実線は式 (13) を CeRu₂ の実験結果の $0.7H_{c2}$ の値でフィットさせたものである。磁場依存性はあまり一致が良くないが、フィットして得られた $\Delta(0)$ を用いて $2\Delta(0)/k_B T_c$ を計算すると約 4 となり、比熱から実験的に求めた値 3.7 (BCS 理論では 3.5) に大体近い値を取る。

次にサイクロトロン有効質量について考える。サイクロトロン有効質量だけは他の物理量と異なり、物質によって変化の仕方に違いがある。多くは（といっても数個しかないが）有効質量の変化は観測されていないが、CeRu₂ と URu₂Si₂ のみ有効質量の減少が観測された。有効質量の減少は Brandt の状態密度を仮定しても導かれる。これは、状態密度を導くときに用いた自己エネ

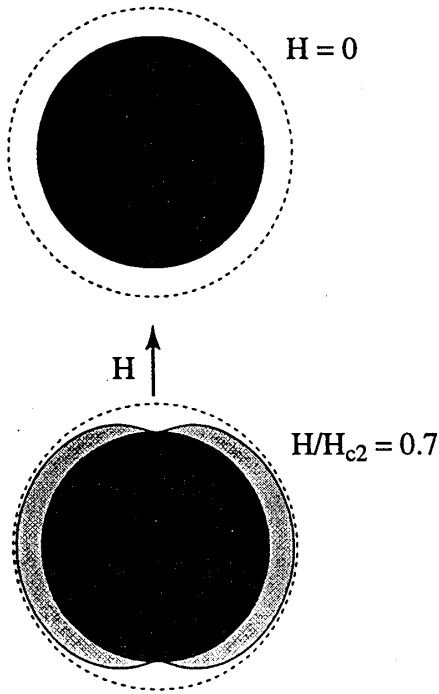


図 18: 磁場中の超伝導ギャップの様子。(a) $H = 0$ 、(b) $H = 0.7H_{c2}$ の場合。点線の円が常伝導でのフェルミエネルギーで、薄い灰色は磁場中で生成された準粒子。磁場 H に垂直方向の赤道付近は準粒子が多く生成されギャップが縮小していることが分かる。

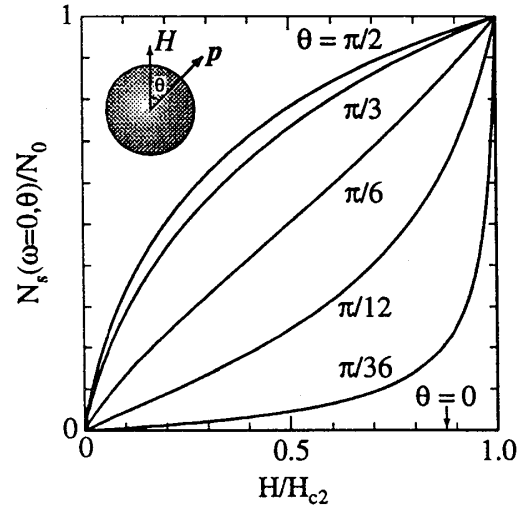


図 19: 超伝導混合状態における準粒子状態密度 N_s/N_0 の磁場依存性。 θ は磁場方向から測った角度で (挿入図参照) $\theta = \pi/2$ が赤道付近の状態密度の磁場依存性を示す。 $\theta = \pi/2$ では $H = 0.5H_{c2}$ でも 8 割以上状態密度が残っている。

ルギーの実部を計算することで求めることができる [24]。超伝導状態での有効質量 \tilde{m}^* は常伝導状態での有効質量 m^* を用いて、

$$\tilde{m}^* \simeq m^* \frac{1}{1 + 4(\Delta(H)/v_F \Lambda)} \quad (13)$$

で与えられる。しかし、Brandt の状態密度は磁束格子の存在のみを考慮して得られるものであり、基本的にはどの物質でも減少するはずである。また、 CeRu_2 、 URu_2Si_2 で式 (13) を使って実験結果を解析すると、求まった Δ は BCS で期待されるものより 4 倍以上の大きな値を示すことから、式 (13) の効果は小さく、何か別の有効質量を減少させる機構が働いている可能性があるかもしれない。有効質量の減少が観測されているのが CeRu_2 、 URu_2Si_2 という、 f 電子を含む重い電子系化合物 (CeRu_2 は電子比熱係数が $30 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ と “少し” 重い電子系化合物であるが) であることに関係しているかもしれない。重い電子系で超伝導中の有効質量が減少するという予測もあり [27]、 CeRu_2 、 URu_2Si_2 がそれで説明できるかどうか興味深い。簡単には、超伝導状態になると重い準粒子が超伝導電子対を形成して超伝導状態に凝縮し、重い準粒子が減少することで相関が減り有効質量が軽くなるというシナリオであるが、電子対の引力に反強磁性的スピン揺らぎを仮定するなど、現段階では単純には適応できない (CeRu_2 はフォノン媒介の BCS 的にみえる)。しかし、強相関伝導系が絡む現象であり、とても興味深い。有効質量の変化としては、正味の有効質量ではなく増強因子の大きさが問題になるであろう。将来的にはバンド計算も利用して、相関の異方性との議論が必要になるものと思われる。

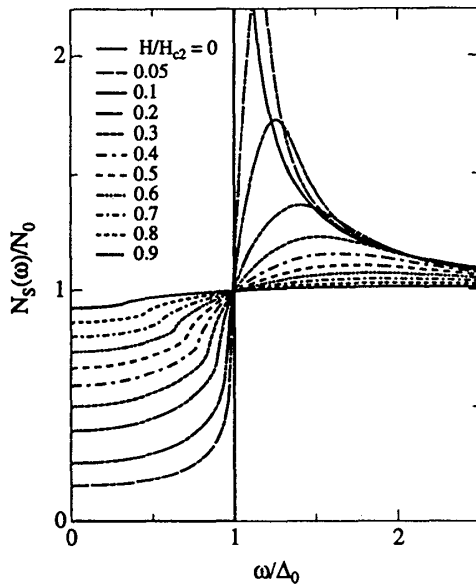


図 20: 磁場中での全準粒子密度のエネルギー分布。 $H = 0$ ではBCS的な超伝導ギャップが開くが、 $H \neq 0$ ではピークがなまされフェルミエネルギーに状態密度が復活してくる様子が分かる。フェルミエネルギー近傍には平坦な構造をもち、準粒子がしっかりと定義できる。

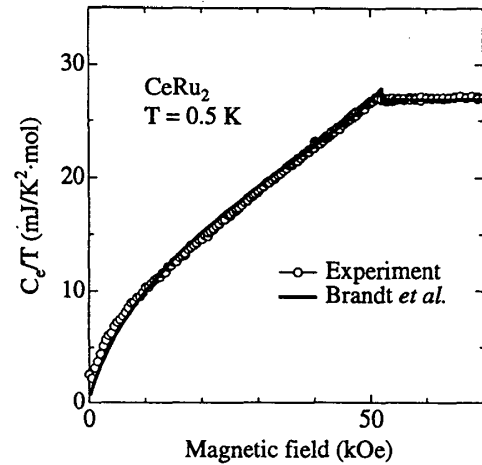


図 21: 磁場中電子比熱の測定結果を $C/T-H$ でプロットした図。実線は Brandt の磁場中での状態密度よく一致しており、Brandt の磁場中での状態密度が実現されていることを示唆している。

ここまでは、Brandt の状態密度を仮定して超伝導混合状態での dHvA 効果を説明してきた。これとは別に、超伝導中の Landau 準位を積極的に取り入れた説明もある [28, 29]。これは、Landau 準位を形成する電子が超伝導電子対を形成することを前提としている。磁場が高いとき ($\hbar\omega_c \gg \Delta$) は同じ Landau 準位内で超伝導電子対を形成し超伝導になるが、磁場が低いとき ($\hbar\omega_c \leq \Delta$) はエネルギー的に他の準位の電子とも対を形成すると考える。磁場が低くなると、他の準位との強い混成により (対生成が原因) Landau 準位にはやけが生じ、 τ_s^{-1} が増加する。実際、この考えに立って $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ の τ_s^{-1} の磁場依存性を議論して、よく説明できると報告する論文もある [17]。この場合、磁束格子を磁気ブリルアンゾーンとして取り扱うことで、ギャップレス "ポイント" が生じ、その数が磁場依存性をすることで dHvA 効果の強度に影響を与えていると考えているようである。しかし、現実の三角格子はピン止めの影響で複雑に磁場依存するので、それをどう考慮すべきなのかがよく分からない。他の物質でも解析をする必要がある。また、磁束格子が乱れていると思われる磁化のピーク効果領域で dHvA 効果を測定する必要もあろう。この場合、通常の磁化の振動の dHvA 効果の検出ではバックグラウンドの変化が大きすぎて測定できないので、超音波での dHvA 効果の検出方法が有効と期待される。

ところで、超伝導中の dHvA 効果とは別に、磁場中の超伝導状態に Landau 準位を積極的に取り入れた理論では、量子極限に近い強磁場領域で超伝導が復活するという reentrant 超伝導の存在が予言されているが [1, 2]、まだ実験的には確認されておらず事の真偽は定かではない。果たしてこれらが量子極限に近い強磁場中の超伝導を正確に記述できるのかどうか、興味深いところである。

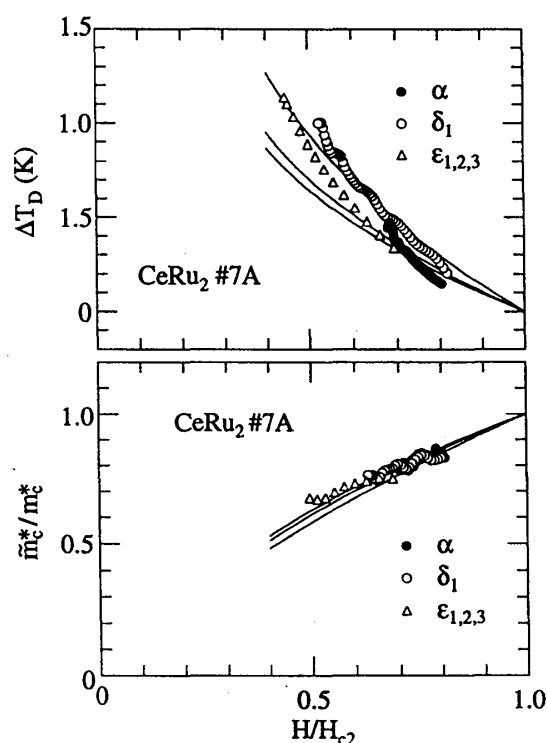


図 22: 超伝導状態で付加されるディンゲル温度 ΔT_D と常伝導状態の値で規格化したサイクロトロン有効質量の磁場依存性。実線は式 (14) と式 (15) を $H = 0.7H_{c2}$ の値でフィットさせたもの。

5 これから

「強相関伝導系の物理」としては、異方的な超伝導ギャップを現実のフェルミ面上で検出するプローブとして、この超伝導状態での dHvA 効果を応用することに興味がある。その前段階として、超伝導状態での dHvA 効果の原理が、普通の等方的な超伝導体で正確に説明できなければならないが、現在はまだこの段階である。

ギャップ検出のプローブとしての可能性を議論した過去の論文 [30, 31] と併せて、正確に記述する概念を確立する必要がある。Brandt の状態密度がほぼ正しいとすると、ギャップレス領域を dHvA 軌道が通過するかしないかで振幅の磁場依存性 (τ_s^{-1} に反映) が異なるはずである。その依存性をできるだけ正確に計算し実験と比較検討することになる。また、有効質量の変化にも情報が含まれることも期待される。

ところで、超伝導ギャップの異方性を検出してフェルミ面上にマップする他の有力な実験手段として角度分解光電子分光がある。角度分解光電子分光は分解能が十分高ければ、実験的に ϵ - k 曲線が描け、フェルミ面を決定でき、さらに超伝導ギャップも直接マップできる。ただ、分解能が今のところ 10 meV 位であり、ギャップの大きな高温超伝導体では観測可能であるが [32, 33]、 T_c の低い化合物では観測できない。しかし、ゼロ磁場での測定が可能であり、将来、分解能が飛躍的に向上すれば非常に有力な実験手段になる可能性がある。

また、非常に古いところではトンネル効果を利用して Sn の超伝導ギャップの大きさの異方性をマッピングした例もある [34]。この研究の真偽の程は定かではないが、可能性のひとつかもしれ

ない。

超伝導中の dHvA 効果は超伝導ギャップをマップするプローブとして可能性を秘めている。dHvA 効果の特徴は、フェルミ面を極めて精度よく求めることができることにあり、理論的背景がはっきりすればギャップの異方性も精度良く観測できるはずである。超伝導電子対の対関数を現実のフェルミ面にマップするとどうなっているのか？ フェルミ面上の f 電子の相関の強い領域や磁性に強く寄与するフェルミ面の領域などにどう左右されるのか、また左右されないのか、興味深い問題である。

参考文献

- [1] Z. Tešanović M. Rasolt and L. Xing: Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 2425.
- [2] L. W. Gruenberg and L. Gunther: Phys. Rev. **176** (1968) 606.
- [3] 大貫惇睦、上田和生、小松原武美、物理学論文選集 IV 重い電子系 (1994).
- [4] D. Shoenberg, *Magnetic oscillations in metals*, Cambridge Univ. Press (1984).
- [5] J. M. Ziman, *Principle of the theory of solids*, Cambridge Univ. Press (1972).
- [6] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, New York : Wiley (1986)
- [7] 田沼静一、固体物理 **5** (1970) 732.
- [8] 小川恵一、青木晴善、金属物理セミナー **2** (1977) 63 & 125.
- [9] 大貫惇睦、伊達宗行監修、大学院物性物理 2, 強相関電子系 (講談社サイエンティフィック、1977) p.309-321.
- [10] I. M. Lifshitz and A. M. Kosevich, Sov. Phys. JETP **2** (1956) 636.
- [11] J. E. Graebner and M. Robbins: Phys. Rev. Lett. **36** (1976) 422.
- [12] Y. Ōnuki, I. Umehara, N. Nagai, T. Ebihara and K. Takita: J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1991) 692.
- [13] R. Corcoran, N. Harrison, C. J. Haworth, *et al.*, Physica B **206 & 207** (1995) 534.
- [14] F. M. Mueller, D. H. Lowndes, Y. K. Chang, A. J. Arko and R. S. List: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3928.
- [15] R. Corcoran, N. Harrison, S. M. Hayden, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **72** (1994) 701.
- [16] N. Harrison, S. M. Hayden, P. Meeson, M. Springford and P. J. van der Wel: Phys. Rev. B **50** (1994) 4208.
- [17] G. Goll, M. Heinecke, A. G. M. Jansen, W. Joss, L. Nguyen, E. Steep, K. Winzer and P. Wyder: Phys. Rev. B **53** (1996) R8871.

- [18] T. Terashima, H. Takeya, S. Uji, K. Kadowaki and H. Aoki: Solid State Comm. **96** (1995) 459.
- [19] M. Hedo, Y. Inada, T. Ishida, E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Ōnuki, M. Higuchi and A. Hasegawa: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 4535.
- [20] C. Bergemann, S. R. Julian, G. J. McMullan, B. K. Howard, G. G. Lonzarich, P. Lejay, J. P. Brison, J. Flouquet: Physica B **230-232** (1997) 348.
- [21] H. Ohkuni, T. Ishida, Y. Inada, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Ōnuki and S. Takahashi: J. Phys. Soc. Jpn. **66** (1997) 48.
- [22] C. M. Fowler, B. L. Freeman, W. L. Hults, J. C. King, F. M. Mueller and J. L. Smith: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 534.
- [23] G. Kido, K. Komorita, H. K. Yoshida and T. Takahashi: J. Phys. Chem. Solids **52** (1991) 465.
- [24] M. Hedo, Y. Inada, K. Sakurai, E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Ōnuki, S. Takahashi, M. Higuchi, T. Maehira and A. Hasegawa: printed in Phil. Mag. B.
- [25] U. Brandt, W. Pesch and L. Tewordt: Z. Phys. **201** (1967) 209.
- [26] K. Maki: Phys. Rev. B **44** (1991) 2861.
- [27] S. Koh: Phys. Rev. B **51** (1995) 11669.
- [28] S. Dukan and Z. Tešanović: Phys. Rev. B **49** (1994) 13017.
- [29] P. Miller and B. L. Gyorffy: J. Phys.: condens. Matter **7** (1995) 5579.
- [30] K. Miyake: Physica B **186-188** (1993) 115.
- [31] R. S. Markiewicz, I. D. Vagner, *et al.*: Solid State Commun. **67** (1988) 43.
- [32] T. Yokoya and T. Takahashi: Solid State Commun. **87** (1993) 553.
- [33] Z. X. Shen, D. S. Dessau, B. O. Wells, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 1553.
- [34] N. V. Zavaritskii: Soviet Physics JETP **21** (1965) 557.